

# BEST AVAILABLE COPY

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-282642  
(43)Date of publication of application : 08.12.1987

---

(51)Int.CI. B01J 23/56  
B01D 53/36  
B01J 23/58

---

(21)Application number : 61-125922 (71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP  
(22)Date of filing : 02.06.1986 (72)Inventor : TAKADA TOSHIHIRO  
MATSUMOTO SHINICHI  
MIYOSHI NAOTO

---

### (54) CATALYST FOR PURIFYING EXHAUST GAS

#### (57)Abstract:

PURPOSE: To prevent the sintering of Pd in a high-temp. reducing atmosphere and to prevent the deterioration of the catalyst by depositing Pd on the catalyst as the perovskite type composite oxide or its equivalent in the catalyst contg. at least Pd.

CONSTITUTION: A monolithic carrier base material with an alumina coat layer is dipped in an aq. soln. of neodymium nitrate, palladium nitrate, cerium nitrate, etc., dried, and baked to form the perovskite type composite oxide of Pd on the alumina coat layer. The material, is then dipped in an aq. soln. of dinitrodiammine platinum, and then dried to obtain the catalyst. The highly active catalyst for purifying the exhaust gas from an internal combustion engine exhibiting sufficiently the characteristic of Pd, having the oxidation-reduction action of the perovskite type composite oxide, and wherein the interaction between Pd and Pt is reduced can be obtained in this way. Besides, the perovskite type structure is expressed by the general formula ABO<sub>3</sub> (A is Nd, La, Ca, etc., and B is Pd, etc.), and a perovskite-like structure, etc., such as an ilmenite structure can exemplified as the equivalent.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

JP 62-282642

2. What is claimed is:

(1) A catalyst for purifying an exhaust gas containing at least Pd as a catalytic component, wherein said Pd is deposited in form of a Perovskite type compounded oxide or in form of a substance equivalent to the compounded oxide.

The invention relates to an exhaust gas purification catalyst for purifying an exhaust gas emitted from an internal combustion engine.

(Prior Art)

Conventionally, catalysts containing noble metals such as platinum (Pt), palladium (Pd), rhodium (Rh) and the like deposited alone or in combination as effective components for simultaneously removing harmful components such as CO, HC, and NO<sub>x</sub> contained in an exhaust gas of an automobile have been used widely.

With respect to a catalyst containing at least Pd, the invention aims to prevent deterioration of the catalyst by preventing sintering of Pd in a high temperature and reductive atmosphere and to provide a highly active exhaust gas purification catalyst capable of maintaining purification capability of the catalyst by lessening the interaction of Pd with Pt or Rh.

(Means for Solving the Problems)

The catalyst for purifying an exhaust gas satisfying the aim of the invention is a catalyst for purifying an exhaust gas containing at least Pd as a catalytic component in which the Pd is deposited in form of a Perovskite type compounded oxide or in form of a substance equivalent to the compounded oxide.

A Perovskite type compounded oxide is defined by the general formula ABO<sub>3</sub>. With respect to the Perovskite type compounded oxide to

be employed in the invention, rare earth metals such as Nd, La, Ce, Pr, Sn, and Ru and alkaline earth metals such as Mg, Ca, Sr, and Ba may be used alone or in combination as the A site ion. The B site ion may be Pd alone or Pd and Ce and further, may be doped with a transition metal.

## ⑪ 公開特許公報 (A)

昭62-282642

⑤Int.Cl.<sup>4</sup>B 01 J 23/56  
B 01 D 53/36  
B 01 J 23/58

識別記号

104

庁内整理番号

A-7918-4G  
Z-8516-4D  
A-7918-4G

④公開 昭和62年(1987)12月8日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全7頁)

⑤発明の名称 排出ガス浄化用触媒

⑥特願 昭61-125922

⑦出願 昭61(1986)6月2日

⑧発明者 高田 登志広 豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
 ⑨発明者 松本 伸一 豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
 ⑩発明者 三好 直人 豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
 ⑪出願人 トヨタ自動車株式会社 豊田市トヨタ町1番地  
 ⑫代理人 弁理士 田淵 経雄 外1名

## 明細書

## 1. 発明の名称

排出ガス浄化用触媒

## 2. 特許請求の範囲

(1) 触媒成分として少なくともPdを含む排出ガス浄化用触媒において、前記Pdがペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同様物として担持されていることを特徴とする排出ガス浄化用触媒。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔産業上の利用分野〕

本発明は、内燃機関から排出される排出ガスを浄化する排出ガス浄化用触媒に関する。

## 〔従来の技術〕

従来、自動車の排出ガス中に含まれるCO、HC、NO<sub>x</sub>等の有害成分を同時に除去するために有効な成分として、白金(Pt)、パラジウム(Pd)、ロジウム(Rh)等の貴金属を単独あるいは組合せて担持した触媒が広く用いられている。しかし、Pt、Rh等の触媒は高価格のため、価格的に余裕のあるPdの

利用が近年進められている。

たとえば、特開昭58-146441号公報には、Pd系触媒の特徴とPt-Rh系触媒の特徴とを兼ね備えた触媒としては、ハニカム形状の触媒担体上に、Pdを含有するアルミナ層とPt-RhあるいはRhを含有するアルミナ層を各々別の層として形成した排気ガス浄化用触媒が開示されている。

特開昭59-162948号公報には、表面にペロブスカイト型複合酸化物とオストレージ性希土類酸化物を含有する層を設けた触媒担体に、PdまたはPdと他の貴金属を触媒成分として担持する排気ガス浄化用触媒が開示されている。

特開昭60-241933号公報には、モノリス担体基材表面にセリウムを含む活性アルミナ層およびこの層上のセリウムおよびLa-Rhのペロブスカイト型複合酸化物を含む活性アルミナ層を備えた担体に、白金が担持された排出ガス浄化用触媒が開示されている。

## 〔発明が解決しようとする問題点〕

しかしながら、Pdは高温での還元雰囲気で焼結

し、活性が著しく劣化するという欠点がある。また、Pdは、PtあるいはRhと共に存すると合金化し、触媒作用がなくなることが知られている（文献 *Journal Catalysis*, 57 185(1978)）。

特開昭58-146441号公報の排気ガス浄化用触媒は、Pd系触媒のアルミナ層とPt-Rh系触媒のアルミナ層を別層としても、両層間のPdとPt-Rh間に反応が生じて、合金化を完全には阻止できないので、上記の問題点を未だ十分に解決したものとはいえない。

特開昭59-162948号公報の排気ガス浄化用触媒は、触媒担体の表面をペロブスカイト型複合酸化物としても、その表面にPdを含む触媒層を形成するので、触媒層内でPdと他の金属との合金化が生じてしまい、触媒層内における合金化を十分には解決し得ない。

特開昭60-241933号公報の排ガス浄化用触媒は、Pdを含んでおらず、しかも担体がペロブスカイト型複合酸化物に形成され、触媒のPt自体はペロブスカイト型複合酸化物になっておらず、後述する

本発明の基礎となり得ない。

本発明は、少なくともPdを含む触媒における、高温還元雰囲気下でのPdの焼結を防止して触媒の劣化を防止するとともに、PdとPtあるいはRhとの相互作用を軽減して触媒の浄化性能を維持させた高活性な排出ガス浄化用触媒を提供することを目的とする。

〔問題点を解決するための手段〕

この目的に沿う本発明の排出ガス浄化用触媒は、触媒成分として少なくともPdを含む排出ガス浄化用触媒において、前記Pdがペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同等物として担持されているものから成る。

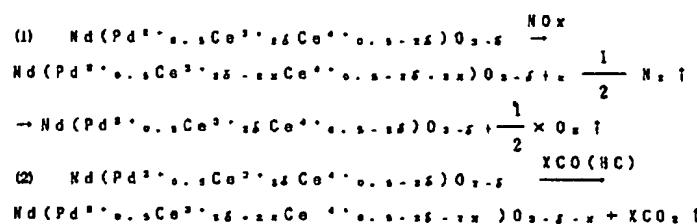
ペロブスカイト型複合酸化物は、一般式 $ABO_3$ で表される。本発明で使用するペロブスカイト型複合酸化物としては、AサイトイオンにNd、La、Ce、Pr、Sn、Eu等の希土類元素あるいはMg、Ca、Sr、Ba等のアルカリ土類金属を単独または組合せて使用することができる。Bサイトイオンとしては、Pd単独でもよいが、PdとCeを用いてもよく、さら

に遷移金属をドープさせてもよい。

本発明においては、ペロブスカイト型複合酸化物の同等物としては、イルメナイト型、 $BaKIO_3$ 型、 $K_2NiF_6$ 型等のいわゆるペロブスカイト型類似構造、スピネル型、ホタル石型構造がある。

〔作用〕

上記触媒において、担持状態でPdとCe（Bサイトイオン）、Nd（Aサイトイオン）とがペロブスカイト型複合酸化物を形成するようにする。このことにより、Pdの還元雰囲気での焼結が防げ、PdとCe、Ndとのペロブスカイト型複合酸化物をコート層表面に分布させることにより、Pdの特性を十分に發揮させると共に、ペロブスカイト型複合酸化物自身の持つ酸化還元作用



や酸素ストレージ効果



も発揮させることが可能である。

〔実施例〕

つぎに、本発明を以下の実施例でさらに詳細に説明する。

実施例1

アルミナ含有率10wt%のアルミナゲル700gにイオン交換水300g、アルミナ粉末1000gを加えて攪拌してスラリーとした。このスラリー中にモノリス担体用基材を1分間浸漬し、引き上げて空気流

によりセル内のスラリーを吹飛ばし 150℃で1時間乾燥後、700℃で2時間焼成した。この操作を2回繰り返し、アルミナコート層を形成した。つぎに硝酸ネオジウム、硝酸パラジウム、硝酸セリウムを2:1:1のモル比に混合し、イオン交換水を加え水溶液とする。この水溶液にアルミナコート層を形成したモノリス担体用基材を浸漬し、引き上げて余分な水分を吹飛ばし、150℃で1時間乾燥して、その後、700℃で2時間焼成し、Pdのペロブスカイト型複合酸化物をアルミナコート層上に形成させた。つぎにジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬して引き上げ、余分な水分を吹飛ばし 150℃で1時間乾燥して第1図に示したような排出ガス浄化用触媒1を得た。なお、このときのPt、Pd、Nd、Ce、La含有量は表1(後に示す)に示すようであった。

第1図において、1は排出ガス浄化用触媒、2は、通常コーチェライトから成るモノリス担体用基材(図示略)上に形成した触媒1を担持するアルミナコート層を示している。アルミナコート層

2には、触媒成分としてのPdのペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同等物(本図ではPdのペロブスカイト型複合酸化物3)とPt4とが担持されている。

実施例1においては、Pdは、ペロブスカイト型複合酸化物3または該複合酸化物と同等物として担持されているので、高温での還元雰囲気中に起きたPdの焼結が避けられてPdの活性が維持されるとともに触媒の耐久性が向上される。

実施例1においては、第1図に示すように、モノリス担体用基材(図示略)に形成された担体のアルミナコート層にPdとPt4が共に担持されているが、Pdはペロブスカイト型複合酸化物3または該複合酸化物と同等物(本図ではペロブスカイト型複合酸化物3)とされているので、PdとPt4との相互作用がなくなり、浄化性能が維持される。

#### 実施例2

実施例1と同じ操作でPdのペロブスカイト型複合酸化物をアルナコート層に形成させた。つぎにアルミナ含有率10wt%のアルミナゾル700gにアル

ミナ粉末1000gを加え、イオン交換水300gを加えて攪拌してスラリーとした。このスラリーにPdの複合酸化物をアルミナコート層に形成させたコーチェライト質モノリス担体用基材を1分間浸漬して引き上げ、空気流によりセル内のスラリーを吹飛ばし 150℃で1時間乾燥後、700℃で2時間焼成した。その後ジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬して引き上げ空気流により余分な水分を吹飛ばし 150℃で1時間乾燥して第2図に示すような排出ガス浄化用触媒5を得た。

実施例2においては、モノリス担体用基材(図示略)上のアルミナコート層にPdのペロブスカイト型複合酸化物またはペロブスカイト複合酸化物と同等物(本図ではPdのペロブスカイト型複合酸化物7)が担持され、これと別の層としてアルミナコート層上にPt6の層が形成される。具体的には、触媒層は、第2図に示すように、下層としてのPdのペロブスカイト型複合酸化物7を担持するアルミナコート層B、上層としてのPt6から成る層9とから成る。

実施例2においては、Pdがペロブスカイト型複合酸化物に形成される。しかもPt6とPdのペロブスカイト型複合酸化物7とが各々別の層8、9として形成されることによりPt6とPdとの相互作用が実施例1にくらべて益々なくなり、浄化性能が向上される。その他の作用は実施例1に準じる。

#### 実施例3

硝酸ネオジウム、硝酸パラジウム、硝酸セリウムを2:1:1のモル比で混合し、イオン交換水を加え水溶液とした。この水溶液を蒸発乾固し、700℃で2時間焼成し、Pdの複合酸化物を形成させた。Pdの複合酸化物は、X線回折測定によりペロブスカイト型構造であることが確認された。このPdのペロブスカイト型複合酸化物を粉末にし、排出ガス浄化用触媒としての触媒効果を発揮させるだけのPd量の複合酸化物とアルミナ粉末1000g、アルミナ含有率10wt%のアルミナゾル700g、蒸留水300gを加えよく攪拌してスラリーを調製した。このスラリー中にモノリス担体用基材を1分間浸漬して引き上げ、空気流でセル内の余分なスラリ

ーを吹飛ばし、150℃で1時間乾燥後700℃で2時間焼成した。次にジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬し引き上げて余分な水分を吹飛ばし、150℃で1時間乾燥して第3図に示したような排出ガス浄化用触媒10を得た。

第3図に示した実施例3の排出ガス浄化用触媒10の構造と第1図に示した実施例1の排出ガス浄化用触媒1の構造は、最終の製品において外観が同一あるいは類似している。しかし、実施例1の触媒1が予め形成されたアルミナコート層中にPdイオン、Ceイオン、Ndイオンを含ませ、取出してアルミナコート層中に焼成してPdのペロブスカイト型複合酸化物3をアルミナコート層2中に形成したものであるのに対し、実施例3の排出ガス浄化用触媒10は予めPdのペロブスカイト型複合酸化物11を作つておき、その後アルミナ、Pt13を混和してアルミナコート層12に担持したものである。

実施例3の排出ガス浄化用触媒10においては、Pdがペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同等物（本図ではPdのペロブスカイト型複

合酸化物11）とされているので、同一のアルミナコート層12にPdとPt13が共存されても、PdとPt4との相互作用はなくなり、浄化性能が維持される。

しかも実施例3においては、実施例1の場合のように触媒作成工程でPdをペロブスカイト型の複合酸化物にするのとは異なり、Pdが予めペロブスカイト型の複合酸化物にされたのち、アルミナコート層に担持されるので実施例1によるものよりもペロブスカイト型複合酸化物化が完全となり、PdとPtの相互作用がさらに起こりにくく良好な排出ガス浄化用触媒が得られる。

#### 実施例4

実施例3に示した手順に従い予めPdのペロブスカイト型複合酸化物を生成させた後、該Pdのペロブスカイト型複合酸化物をアルミナコート層に含有させた。つぎにアルミナ含有率10wt%のアルミナゾル700g、アルミナ粉末1000g、イオン交換水300gを加えて攪拌してスラリーとした。このスラリーにPdのペロブスカイト型複合酸化物をアルミ

ナコート層に含有させたモノリス担体用基材を1分間浸漬して引き上げ空気流によりセル内のスラリーを吹飛ばし150℃で1時間乾燥後700℃で2時間焼成した。その後ジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬して引き上げ空気流により、余分な水を吹き飛ばし、150℃で1時間乾燥して第4図に示したような排出ガス浄化用触媒15を得た。

実施例4においては、第4図に示すように、モノリス担体基材（図示略）上に下層としてPdのペロブスカイト型複合酸化物17を含有するアルミナコート層18、上層としてPt16を含有するアルミナコート層19が形成されており、層18、19は別層に形成されている。

実施例4においては、Pdがペロブスカイト型複合酸化物に形成され、該Pdのペロブスカイト型複合酸化物17とPt16とが各々別のアルミナコート層18、19として形成されることにより、Pt16とPdとの相互作用が生じにくくなり、浄化作用が益々維持される。さらに実施例4においては、Pdが予め完全にペロブスカイト型の複合酸化物にされてか

らアルミナコート層18に担持されるので実施例1ないし3と比較して最もPdとPtの相互作用が起きにくくなる。

また、上記の本発明の実施例を従来例と比較するために、つぎに述べる比較例を用意した。

#### 比較例1

アルミナ含有率10wt%のアルミナゾル700g、アルミナ粉末1000g、イオン交換水300gとさらに酸化ネオジウム、酸化セリウムを2:1のモル比で加え混合し攪拌してスラリーとした。このスラリーにモノリス担体用基材を1分間浸漬して引き上げ空気流によりセル内のスラリーを吹飛ばし150℃で1時間乾燥後700℃で2時間焼成してNd、Ceを含有するアルミナコート層を形成した。次いで塩化パラジウム水溶液に1時間浸漬し150℃で1時間乾燥してPd、Nd、Ceを1:2:1のモル比で含有するアルミナコート層を形成した。つぎに、ジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬し、150℃で1時間乾燥して第5図に示すような排出ガス浄化用触媒20を得た。21は、NdとCeの混合物

22と、PdとPtの混合物23を含有するアルミナコート層であり、Pdはペロブスカイト型複合酸化物を形成していない。

## 比較例2

比較例1に示した手順に従いPd、Nd、Ceを1:2:1のモル比で含有するアルミナコート層を形成した。アルミナ含有率10wt%のアルミナゲル70g、イオン交換水300g、アルミナ粉末1000gを混合し攪拌してスラリーとした。このスラリー中に比較例1と同様にPd、Nd、Ceを1:2:1のモル比で含有するアルミナコート層を形成させたモノリス担体用基材を1分間浸漬して引き上げ空気流によりセル内のスラリーを吹飛ばし150℃で1時間乾燥した後、700℃で2時間焼成した。つぎに、ジニトロジアンミン白金水溶液に1時間浸漬し、150℃で1時間乾燥して第6図に示すような排出ガス浄化用触媒25を得た。26は下層としてPdとNdとCeの化合物を含有するアルミナコート層、27は上層としてPtを含有するアルミナコート層を示している。Pdはペロブスカイト型複合酸化物とはな

っていない。この例は、特開昭58-146441号の触媒に対応するものである。

上記の実施例1ないし4、比較例1および2を表すと次の通りである。

表1. 担体1あたりの触媒含有量

触媒番	Pt(g)	Pd(g)	Nd(tg)	Ce(tg)
1(実施例1)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01
5(〃2)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01
10(〃3)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01
15(〃4)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01
20(比較例1)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01
25(〃2)	0.3	1.0 (0.01tg)	0.02	0.01

これら6種の触媒は以下の方法により耐久試験を実施し浄化性能を評価した。耐久試験は6気筒2800ccエンジンの排気系に触媒を設置する方法で実施し、空燃比A/F=16.0、空間速度S.V=60,000hr<sup>-1</sup>、触媒床温度800℃である。被覆により劣化

を促進するためにエンジン吸気系にエンジンオイルを1時間あたり30cc滴下し燃料として0.05g/lの鉛を含有するガソリンを用いた。

触媒評価は、CO 2%、C<sub>x</sub>H<sub>y</sub> 200ppm、C<sub>x</sub>H<sub>y</sub> 800ppm、O<sub>2</sub> 2%、CO<sub>x</sub> 10%、H<sub>2</sub>O 10%、残りN<sub>2</sub>でS.V=56750 hr<sup>-1</sup>で各触媒に通し、CO、HCの浄化率を測定した。測定結果を第7図と第8図に示した。第7図および第8図から、Pdをペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同等物として担持した実施例1ないし実施例4の排出ガス浄化用触媒a、b、c、d(a、b、c、dはそれぞれ実施例1、2、3、4に対応)は、ペロブスカイト型複合酸化物にされていない比較例1および比較例2の排出ガス浄化用触媒e、fに比較して低温で従来の触媒より高活性を示し、高温側でも高い性能が得られ、PdとPtが共存する排出ガス浄化用触媒の改善がはかられていることがわかる。

高活性で耐久性に優れた排出ガス浄化用触媒が得られたのは、PdをNd、Ceとのペロブスカイト型複合酸化物または該複合酸化物と同等物として担

持することにより、Pdの劣化原因であるPdとPtとの相互作用が排除されたため、またPdの高温での還元雰囲気中の焼結による活性の低下が排除されたためである。さらに、これらの実施例によるときはPdがペロブスカイト型複合酸化物として担持されることにより、排出ガス浄化用触媒にペロブスカイト型複合酸化物の持つ多孔質性が加えられ、細孔容積が増加されて担体の表面積が得られるので、より高性能な排出ガス浄化用触媒が得られる。

第7図および第8図の耐久試験の結果において、第1実施例ないし第4実施例で得た排出ガス浄化用触媒a、b、c、d間に大きな有意差が見られなかったのは、各実施例による排出ガス浄化用触媒a、b、c、dのいずれもPdがペロブスカイト型複合酸化物として担持されているために、PdとPtとの相互作用が排除されて、両者間に影響が与えられないためと想推される。

さらに前記作用で述べたような酸素ストレージ効果を発揮させることができる。

(発明の効果)・

したがって、本発明の排出ガス浄化用触媒によるときは、Pdをペロブスカイト型複合酸化物および該複合酸化物として担持することによりPdとPtとの相互作用が排除でき、Pdの高温還元雰囲気中の焼結による性能の劣化も排除することができる。

さらにペロブスカイト型構造自身の持つ酸化還元効果や酸素ストレージ効果が加わり、より耐久性にすぐれ、高活性な触媒を得ることができる。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の実施例1に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第2図は本発明の実施例2に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第3図は本発明の実施例3に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第4図は本発明の実施例4に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第5図は第1図ないし第4図の排出ガス浄化用触媒に対する比較例1に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第6図は第5図とは別の比較例2に係る排出ガス浄化用触媒の構成図。

第7図は実施例1ないし実施例4および比較例1、2の排出ガス浄化用触媒のCO活性を示す特性図。

第8図は実施例1ないし実施例4および比較例1、2の排出ガス浄化用触媒のHC活性を示す特性図。

である。

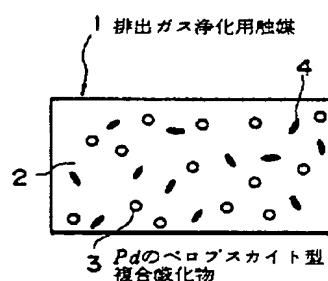
1、5、10、15…排出ガス浄化用触媒

3、7、11、17…Pdのペロブスカイト型複合酸化物

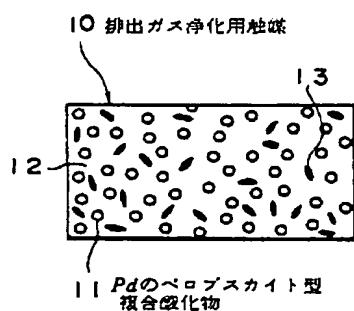
特許出願人 トヨタ自動車株式会社  
代理人 弁理士 田淵経雄

(他1名)

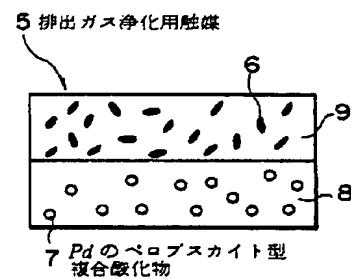
第1図



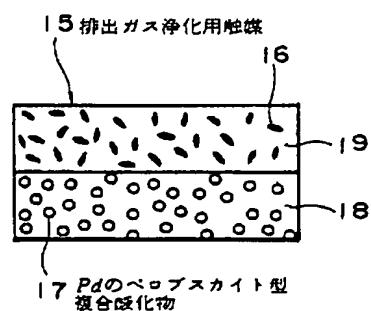
第3図



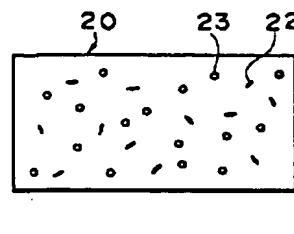
第2図



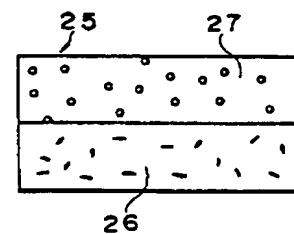
第4図



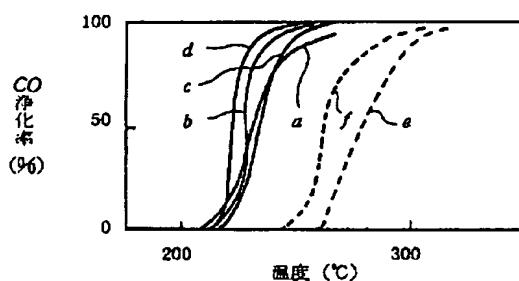
第5図



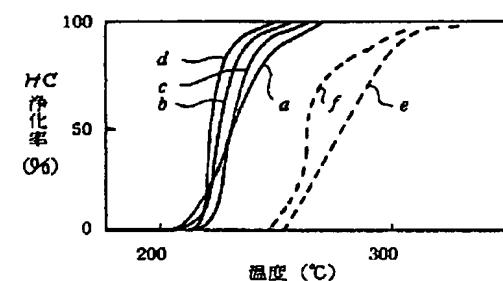
第6図



第7図



第8図



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**